

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2004年2月5日 (05.02.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/011388 A1

(51) 国際特許分類7:

C04B 35/573

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2003/009434

(22) 国際出願日: 2003年7月25日 (25.07.2003)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2002-218247 2002年7月26日 (26.07.2002) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人産業技術総合研究所 (NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) [JP/JP]; 〒100-8921 東京都千代田区霞が関1丁目3番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 谷 英治 (TANI, Elji) [JP/JP]; 〒841-0052 佐賀県鳥栖市宿町807番地1 独立行政法人産業技術総合研究所九州センター内 Saga (JP).

(74) 代理人: 林 宏, 外 (HAYASHI, Hiroshi et al.); 〒160-0023 東京都新宿区西新宿1丁目9番12号第一大正建物ビル 林宏特許事務所内 Tokyo (JP).

(81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(広域): ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SILICON CARBIDE THERMOSTABLE POROUS STRUCTURAL MATERIAL AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材及びその製造方法

(57) Abstract: A carbon-powder-made porous structural body of corporeal skeleton obtained by molding carbon powder is impregnated and coated with a slurry of a resin as a carbon source and silicon powder, carbonized at 900 to 1300°C in vacuum or an inert atmosphere and subjected to reactive sintering performed at 1300°C or higher temperature in vacuum or an inert atmosphere. Thus, not only can porous silicon carbide exhibiting high wettability with fused silicon be produced but also a carbonized porous structural body having open pores attributed to volume reduction reaction formed therein can be obtained. This carbonized porous structural body is subjected to silicon fusion impregnation performed at 1300 to 1800°C in vacuum or an inert atmosphere.

WO 2004/011388 A1

(57) 要約: 炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸塗布し、真空或いは不活性雰囲気下において900～1300°Cで炭素化した後に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300°C以上の温度で反応焼結させる。これにより、溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素を生成させると同時に、体積減少反応に起因する開気孔を生成させた炭素化多孔質構造体が得られるので、この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300～1800°Cの温度でシリコンを溶融含浸させる。

明細書

炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材及びその製造方法

5 技術分野

本発明は、炭素粉末を用いてハニカム形状等に成形した炭素粉末製多孔質構造体を用い、シリコンと炭素との反応焼結とシリコンの溶融含浸を組み合わせた二段反応焼結、或いは単なるシリコンの溶融含浸により形成される炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材及びそれを製造する方法に関するものであり、更に具体的には、高温構造部材、熱交換器、高温用触媒担体、高温用フィルター、溶融金属濾過材、炉内部材等の多くの用途に適する耐熱多孔質構造材及びその製造方法に関するものである。

背景技術

15 炭化ケイ素系セラミックスは軽量で、耐熱性、耐磨耗性、耐食性などに優れていることから、近年、例えば、高温耐食部材、ヒーター材、熱交換器、耐磨耗部材や、さらには研削材、砥石などの用途に幅広く用いられている。この炭化ケイ素は、主に焼結技術により製造されているため、焼結助剤が必要であり、また、緻密な塊状で使われていて、複雑形状を有するフィルター、ハニカム形状等の軽量多孔質構造材としての実用化までには至っていない。

20 押し出し成形でハニカム状の炭化ケイ素系セラミックスも作製されているが、成形機及びその金型が高価であり、形状もその金型により決まってしま

うという問題がある。

また、焼結助剤を用いるために耐熱性が低く、焼結による大きい寸法収縮がある。

また、紙製の段ボールに樹脂及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸後、
5 炭素化して反応焼結とシリコンの溶融含浸をして、ハニカム状の炭化ケイ素系セラミックスを作製する方法も、特開2001-226174号公報によって開示されているが、紙製の段ボールでは、焼成時に10～20%の寸法収縮があり、表面も平面にならずに波打ったものとなる。更に、紙の炭素残存量も段ボール重量の10wt%程度しかなく、樹脂からの炭素収率も高々60wt%であるので炭素量が少なく、シリコンと反応して炭化ケイ素になる量も少ないので構造材としての強度は高くないという問題点がある。また、紙製の段ボールは古紙を原料とするため、炭酸カルシウム、酸化チタン等の酸化物が段ボール重量の10wt%程度含まれており、構造材料としてはこれらの酸化物が不純物となって耐熱性を低下させる。

15 本発明者は、繊維強化炭化ケイ素複合材の研究において、樹脂からの炭素とシリコン粉末との炭化ケイ素生成の反応が体積減少を伴い、繊維との密着性がよいことを見出した（特許第2045825号）。また、段ボールやスポンジ等の多孔性材料にフェノール樹脂とシリコン粉末のスラリーを含浸させ、反応焼結後にシリコンを溶融含浸させることにより、骨格部分が緻密で比表面積の小さい炭化ケイ素系耐熱性軽量多孔質構造材が作製できることを見出した
20 （特開2001-226174号）。

本発明は、このような知見に基づいて、従来の炭化ケイ素系多孔質構造材

及びその製造方法における各種欠点を克服し、多孔質構造体の有形骨格に成形したままの形状をほとんど収縮なく保持させて、骨格部分が緻密で強固であり、複雑な形状のものでも容易に製造可能にした低価格プロセスでの炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材及びその製造方法を提供するものである。

すなわち、本発明者は、炭化ケイ素系耐熱軽量多孔質構造材について鋭意研究を重ねた結果、段ボール形状等の炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に、シリコン粉末と樹脂類の混合スラリーを含浸塗布し、真空或いは不活性雰囲気中で焼成すると、1000°Cでの炭素化後でも形状を保持する強度があり、しかも寸法収縮も3%程度と殆どなく、1300度以上ではシリコン粉末及び樹脂類からの炭素との体積減少を伴った炭化ケイ素生成反応により、ポーラスな炭化ケイ素を表面に生成することを確かめた。

また、シリコン融点以上の温度でのシリコンの溶融含浸においては、このポーラスな炭化ケイ素は溶融シリコンとの濡れ性がよく、容易に溶融シリコンと反応し、その内部の炭素粉末製多孔質構造体とも反応し、緻密な炭化ケイ素を生成することを見出し、本発明を完成するに至った。更に、炭素粉末製多孔質構造体有形骨格に樹脂スラリーを含浸塗布後、炭素化し、それにシリコンを溶融含浸しても緻密な炭化ケイ素を生成できることも確かめた。

発明の開示

上記に基づいて完成した本発明の第1の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材は、溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素を含むと同時に、体積減少反応に起因する開気孔を表面に生成した炭素化多孔質構造体にシリコンを溶

融含浸させてなり、上記炭素化多孔質構造体が、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸塗布して炭素化した後に、反応焼結により形成したことを特徴とするものである。

5 また、本発明の第2の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材は、溶融シリコンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成して炭素化後も形状を保持できるようにした炭素化多孔質構造体にシリコンを溶融含
10 浸させてなり、上記炭素化多孔質構造体が、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類を含んだスラリーを含浸塗布して炭素化することにより形成したことを特徴とするものである。

上記有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体としては、一般的には、炭素粉末に結合材を添加してハニカム形状、段ボール形状または厚紙形状に成形してなる炭素製品が用いられる。

更に具体的に説明すると、本発明の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材は、炭
15 素粉末製多孔質構造体有形骨格を樹脂で覆い、炭素化後もその形状を保持させ、しかも、必要に応じて樹脂中にシリコン粉末を混合して、反応焼結で樹脂から
のアモルファス炭素とシリコン粉末から溶融シリコンと濡れ性のよい炭化ケ
イ素と体積減少反応に起因する開気孔を骨格表面部分に生成させた後、シリコ
ンの溶融含浸により形成したものである。

20 樹脂を炭素化して得られるアモルファス炭素は、緻密な状態であると、溶
融シリコンとはほとんど反応しない。しかし、炭素粉末製多孔質構造体が溶融
シリコンと反応しやすい多孔質炭素であるので、シリコン粉末を樹脂に混合し

て反応焼結しなくとも、樹脂からのアモルファス炭素量が少ない場合には、シリコンの溶融含浸は可能である。そして、炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格が炭素で形成されているため、焼成後の収縮が殆どなく、しかも、炭素収率の低い紙ではなく炭素そのものを原料にしているため、炭素がシリコンと反応して生成する炭化ケイ素量が多く、高強度となる。

また、本発明の上記第1の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を製造する方法は、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸塗布して、真空或いは不活性雰囲気下において900～1300°Cで炭素化した後に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300°C以上の温度で反応焼結させることにより、溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素を生成させると同時に、体積減少反応に起因する開気孔を生成させた炭素化多孔質構造体とし、この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300～1800°Cの温度でシリコンを溶融含浸させることを特徴とするものである。

更に、本発明の上記第2の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を製造する方法は、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類を含んだスラリーを含浸塗布して、真空或いは不活性雰囲気下において900～1300°Cで炭素化することにより、溶融シリコンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成した炭素化多孔質構造体とし、この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300～1800°Cの温度でシリコンを溶融含浸させることを特徴とするものである。

このような本発明の方法によれば、複雑形状の大型構造体でも容易に製造できるし、多孔質構造体の加工も、炭素化後に行えば、加工に耐える強度を備えているので容易に行うことができる。

上記方法において用いる有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体としては、上記スラリーを表面に保持できる構造体が望ましく、具体的には、炭素粉末に結合材を添加してハニカム形状に押出成形し、或いは、炭素粉末に結合材を添加して製紙することにより段ボール形状または厚紙形状に成形してなる炭素製品が適している。

また、上記方法において多孔質構造体の有形骨格に含浸させる炭素源としての樹脂類には、フェノール樹脂、フラン樹脂、ポリカルボシラン、有機金属ポリマー等、あるいは、ピッチが好ましいものとして挙げられる。これらの樹脂類はその1種を用いてもよいし、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

さらに、炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸させるスラリーに、添加剤として、炭素粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックの少なくとも1種を添加し、または、骨材或いは酸化防止剤として、炭化ケイ素、窒化ケイ素、チタニア、ジルコニア、ジルコン、アルミナ、シリカ、ムライト、ニケイ化モリブデン、炭化ホウ素、ホウ素、シリコン粉末等の少なくとも1種を添加してもよい。

上記方法において用いるスラリーに含ませるシリコン粉末或いは溶融含浸用のシリコンとしては、マグネシウム、アルミニウム、チタニウム、クロミウム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ジルコニウム、ニオビウム、モリブデン、或いはタンクステンから選ばれた少なくとも1種のシリコン合金、またはそれらとシリコン粉末との混合物でもよい。

以上に述べた本発明の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材及びその製造方法によれば、最初の多孔質構造体の形状を保った炭化ケイ素系耐熱性軽量多孔質複合材を容易に製造することができるとともに、複雑な形状のものでも容易に製造することができ、高温用フィルター、高温構造部材、断熱材、溶融金属濾過材、バーナープレート、ヒーター材、高温用消音材等の多くの用途に利用することができる。

発明を実施するための最良の形態

次に、本発明方法の好適な実施形態について説明する。

本発明に係る第1の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を製造するに際しては、まず、溶解した炭素源としてのフェノール樹脂等とシリコン粉末とを混合したスラリーを、有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に十分に塗布し、あるいはそのスラリーに炭素粉末製多孔質構造体を浸して含浸させた後、乾燥する。

また、本発明に係る第2の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を製造するに際しては、炭素源としてのフェノール樹脂等を含んだスラリーを、同様にして有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に十分に含浸塗布し、乾燥する。

上記乾燥は、いずれも約70℃で12時間程度行うのが望まれる。

上記有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体としては、前述したように、炭素粉末に結合材を添加してハニカム形状に押出成形し、或いは、炭素粉末に結合材を添加して紙状に成形することにより段ボール形状または厚紙形状に成形してなる炭素製品を、そのまで、あるいは接着剤等で適宜形状に接合して用いることができる。

また、多孔質構造体の有形骨格に含浸させる上記樹脂類としては、フェノール樹脂、フラン樹脂、ポリカルボシラン、有機金属ポリマー等、あるいは、ピッチから選ばれた少なくとも1種を用いることができ、必要に応じて前記添加剤等を添加することができる。

5 さらに、炭化ケイ素の生成に用いるシリコン粉末としては、微粉末が適しており、特に平均粒径が30μm以下の微粉末が好適である。粒径が大きなものは、ボールミル等により粉碎して微粉化すればよい。

10 次に、このようにして得られた炭素粉末製多孔質構造体は、真空あるいは不活性雰囲気下で900～1300°C程度の温度において炭素化する。上記第1の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を製造するためにスラリーにシリコン粉末を添加した場合には、これによって得られる炭素化多孔質構造体は、骨格部分が炭素粉末で、その表面部分にフェノール樹脂の炭素化によるアモルファス炭素部分と、シリコン粉末が混在して、この炭素粉末骨格を覆っている状態になる。

15 そして、上記第1及び第2の多孔質構造材のいずれを製造する場合にも、有形骨格の形状は変形したり収縮したりすることなく、元の形状とほぼ同じである。また、炭素化した多孔質構造体は加工可能な強度がある。

20 上記スラリーにシリコン粉末を添加した場合には、この炭素化した多孔質構造体は、その炭素化後に、真空或いは不活性雰囲気下において1300～1420°C程度の温度で焼成処理し、フェノール樹脂からのアモルファス炭素とシリコンとを反応させて、ポーラスな炭化ケイ素を有形骨格上に形成させる。これにより溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素が生成されると同

時に、この反応が体積減少反応であるため、その体積減少反応に起因する開気孔が表面に生成される。その結果、表面部が、気孔を有する炭化ケイ素により形成された多孔質構造体を得る。

次に、この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、
5 1300～1800℃の温度でシリコンを溶融含浸させることにより、本発明の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材を得る。

なお、上記本発明の方法において用いるシリコン粉末と樹脂からの炭素との混合の割合は、シリコンと炭素との原子比が $Si/C = 0 \sim 5$ になるように選ぶのが望ましい。

10 前述したように、シリコン粉末をスラリーにおける樹脂に混合して反応焼結しなくとも、樹脂からのアモルファス炭素量が少ない場合には、炭素化後のシリコンの溶融含浸は可能である。上記第2の多孔質構造材はこの場合に該当するものであり、溶融シリコンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成した炭素化多孔質構造体にシリコンを溶融含浸させることになる。したがって、有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に炭素源としての樹脂類を含んだスラリーを含浸塗布して炭素化することにより、溶融シリコンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成した炭素化多孔質構造体とし、この炭素化多孔質構造体にシリコンを溶融含浸させることになる。その他の製造条件は上述したところと変わることはない。
15
20

実施例

次に、実施例により本発明の方法をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

[実施例 1]

フェノール樹脂の炭素化による炭素とシリコンとの原子比が 2:3 になる 5 割合にフェノール樹脂とシリコン粉末との混合量を設定し、エチルアルコールでフェノール樹脂を溶解してスラリーを調製し、シリコンの粒径を小さくするために 1 日間ボールミル混合し、それらを活性炭素粉末製の積層状段ボール形状のエアコンフィルターに含浸した後、乾燥させた。

次に、このエアコンフィルターをアルゴン雰囲気下で 1000°C、1 時間 10 焼成して炭素化した。得られた炭素質多孔体は、加工が十分可能な程度の強度があり、収縮も 3% 程度と極めて小さかった。この炭素質多孔体を、真空下で 1450°C、1 時間で反応焼結とシリコンの溶融含浸を行い、段ボール形状の炭化ケイ素系耐熱多孔質複合材を得た。

得られた炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材は、原料の段ボール形状と同じ構 15 造で、炭素化後のものと同じ寸法であり、表面も平坦であった。また、炭化ケイ素製骨格も紙製段ボールからのものと異なり、厚みがあり、強度的にも優れていた。

[実施例 2]

エチルアルコールでフェノール樹脂を溶解してスラリーを調整し、活性炭 20 素粉末製の積層状段ボール形状のエアコンフィルターに含浸した後、乾燥させた。次に、このエアコンフィルターをアルゴン雰囲気下で 1000°C、1 時間 焼成して炭素化した。得られた炭素質多孔体は、加工が十分可能な程度の強度

があり、収縮も 3 %程度と極めて小さかった。この炭素質多孔体を、真空下で 1450 °C、1 時間でシリコン溶融含浸を行い、段ボール形状の炭化ケイ素系耐熱多孔質複合材を得た。

得られた炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材は、原料の段ボール形状と同じ構造で、炭素化後のものと同じ寸法であり、表面も平坦であった。また、炭化ケイ素製骨格も紙製段ボールからのものと異なり、厚みがあり、強度的にも優れていた。
5

[比較例 1]

活性炭素粉末製の積層状段ボール形状のエアコンフィルターをアルゴン
10 雰囲気下で 1000 °C、1 時間焼成して炭素化した。得られた炭素多孔体は、触れると粉末状になり、形状を留めなかつた。

請求の範囲

1. 溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素を含むと同時に、体積減少反応に起因する開気孔を表面に生成した炭素化多孔質構造体にシリコンを溶融合含浸させてなり、
5 上記炭素化多孔質構造体が、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸塗布して炭素化した後に、反応焼結により形成したものである、
10 ことを特徴とする炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材。
2. 溶融シリコンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成した炭素化多孔質構造体にシリコンを溶融合含浸させてなり、
上記炭素化多孔質構造体が、炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭素源としての樹脂類を含んだスラリーを含浸塗布して炭素化することにより形成したものである、
15 ことを特徴とする炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材。
3. 有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体として、
炭素粉末に結合材を添加してハニカム形状、段ボール形状または厚紙形状に成形してなる炭素製品を用いた、
20 ことを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材。
4. 炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、炭

素源としての樹脂類及びシリコン粉末を含んだスラリーを含浸塗布して、真
空或いは不活性雰囲気下において900～1300°Cで炭素化した後に、真
空或いは不活性雰囲気下において、1300°C以上の温度で反応焼結させることにより、溶融シリコンと濡れ性のよい多孔質炭化ケイ素を生成させると
5 同時に、体積減少反応に起因する開気孔を生成させた炭素化多孔質構造体と
し、この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、13
00～1800°Cの温度でシリコンを溶融含浸させる、
ことを特徴とする炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

5. 炭素粉末を用いて成形した有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体に、
10 炭素源としての樹脂類を含んだスラリーを含浸塗布して、真空或いは不活性
雰囲気下において900～1300°Cで炭素化することにより、溶融シリコ
ンと濡れ性のよい炭素粉末を含むと同時に、樹脂からの炭素を表面に生成し
た炭素化多孔質構造体とし、
この炭素化多孔質構造体に、真空或いは不活性雰囲気下において、1300
15 ～1800°Cの温度でシリコンを溶融含浸させる、
ことを特徴とする炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

6. 有形骨格をなす炭素粉末製多孔質構造体を、炭素粉末に結合材を添加し
てハニカム形状に押出成形し、或いは炭素粉末に結合材を添加して製紙する
ことにより段ボール形状または厚紙形状に成形してなる炭素製品を用いる、
20 ことを特徴とする特許請求の範囲第4項または第5項に記載の炭化ケイ素
系耐熱多孔質構造体の製造方法。

7. 炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸塗布する樹脂類として、フェ

ノール樹脂、フラン樹脂、ポリカルボシラン、有機金属ポリマー、あるいは、ピッチから選ばれた少なくとも 1 種を用いる、

ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

5 8. 炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸させるスラリーに、添加剤として、炭素粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックから選ばれた少なくとも 1 種を加える、

ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

10 9. 炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸させるスラリーに、骨材或いは酸化防止剤として、炭化ケイ素、窒化ケイ素、チタニア、ジルコニア、ジルコン、アルミナ、シリカ、ムライト、ニケイ化モリブデン、炭化ホウ素、ホウ素、シリコン粉末から選ばれた少なくとも 1 種を添加する、

ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

15 10. スラリーに含ませるシリコン粉末或いは溶融含浸用のシリコンとして、マグネシウム、アルミニウム、チタニウム、クロミウム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ジルコニウム、ニオビウム、モリブデン、或いはタングステンから選ばれた少なくとも 1 種のシリコン合金、またはそれらとシリコン粉末の混合物を用いる、

20 ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

1 1. 炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸塗布するスラリーの樹脂類として、フェノール樹脂、フラン樹脂、ポリカルボシラン、有機金属ポリマー等、あるいは、ピッチから選ばれた少なくとも 1 種を用い、上記スラリーの添加剤として、炭素粉末、黒鉛粉末、カーボンブラックから選ばれた少な
5 くとも 1 種を加える、

ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

1 2. 炭素粉末製多孔質構造体の有形骨格に含浸させるスラリーに、骨材或いは酸化防止剤として、炭化ケイ素、窒化ケイ素、チタニア、ジルコニア、ジルコン、アルミナ、シリカ、ムライト、ニケイ化モリブデン、炭化ホウ素、ホウ素、シリコン粉末から選ばれた少なくとも 1 種を添加し、

上記スラリーに含ませるシリコン粉末或いは溶融含浸用のシリコンとして、マグネシウム、アルミニウム、チタニウム、クロミウム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、ジルコニウム、ニオビウム、モリブデン、或いはタングステンから選ばれた少なくとも 1 種のシリコン合金、またはそれ
15 らとシリコン粉末の混合物を用いる、

ことを特徴とする特許請求の範囲第 4 項または第 5 項に記載の炭化ケイ素系耐熱多孔質構造材の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/09434

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C04B35/573

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C04B35/573, 35/65, 41/85, 35/52, B28B11/04Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-226174 A (Director General of National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 21 August, 2001 (21.08.01), Claim 1; Par. No. [0010] (Family: none)	1-12
Y	JP 62-123067 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 04 June, 1987 (04.06.87), Page 2, lower left column, line 19 to lower right column, line 20 (Family: none)	1-12

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 September, 2003 (05.09.03)Date of mailing of the international search report
16 September, 2003 (16.09.03)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 C04B 35/573

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. 7 C04B 35/573 35/65 41/85 35/52 B28B 11/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2001-226174 A (経済産業省産業技術総合研究所長) 2001.08.21 請求項1, 段落0010 (ファミリーなし)	1-12
Y	JP 62-123067 A (旭硝子株式会社) 1987.06.04 第2頁左下欄第19行-右下欄第20行 (ファミリーなし)	1-12

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05.09.03

国際調査報告の発送日

16.09.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大橋 賢一

4T 8825



電話番号 03-3581-1101 内線 6791